

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-253953

(43)Date of publication of application : 10.09.2002

(51)Int.Cl.

B01J 19/08

C23C 14/00

C23C 14/24

H05H 1/42

H05H 1/44

(21)Application number : 2001-055752

(71)Applicant : C I KASEI CO LTD

(22)Date of filing : 28.02.2001

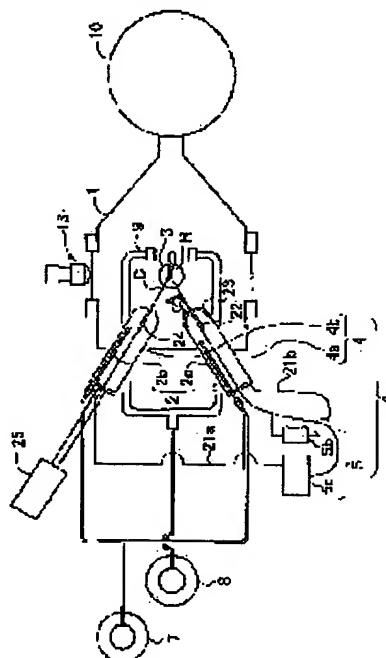
(72)Inventor : TAKINOSAWA HIROOMI

## (54) APPARATUS AND METHOD OF MANUFACTURING ULTRAFINE PARTICLE

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an apparatus and method of manufacturing an ultrafine particle having a small quantity of impurities with little limitation imposed on raw materials, by which high productivity, low production cost, high energy efficiency, simplification of the apparatus and improvement of reliability are attained.

**SOLUTION:** The ultrafine particle is formed by energizing a central electrode 22 of a non-translational plasma torch 4a and an electrode 24 of a translational plasma torch 4b with DC power source while blowing a working gas to form V-shaped plasma arc C or Y-shaped plasma arc, applying the V-shaped plasma arc C or Y-shaped plasma arc to a raw material body 3 to obtain ultrafine particle and gasifying the raw material body 3 to generate an evaporation gas and blowing a reaction/cooling gas to the evaporation gas to react and/or cool the evaporation gas with the reaction/cooling gas.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-253953

(P2002-253953A)

(43)公開日 平成14年9月10日(2002.9.10)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テーマコード(参考)

B 0 1 J 19/08

B 0 1 J 19/08

K 4 G 0 7 5

C 2 3 C 14/00

C 2 3 C 14/00

A 4 K 0 2 9

14/24

14/24

F

H 0 5 H 1/42

H 0 5 H 1/42

1/44

1/44

審査請求 未請求 請求項の数5 O L (全 10 頁)

(21)出願番号

特願2001-55752(P2001-55752)

(71)出願人 000106726

シーアイ化成株式会社

東京都中央区京橋1丁目18番1号

(22)出願日

平成13年2月28日(2001.2.28)

(72)発明者 滝野沢 洋臣

東京都中央区京橋一丁目18番1号 シーア

イ化成株式会社内

(74)代理人 100064908

弁理士 志賀 正武 (外6名)

Fターム(参考) 4G075 AA27 AA42 AA65 BA01 BA06

BB02 BD01 BD12 CA12 CA17

CA25 CA47 CA57 DA01 DA02

EA05 EB01 EB43 EC01 EC21

EE02 FB02 FC02

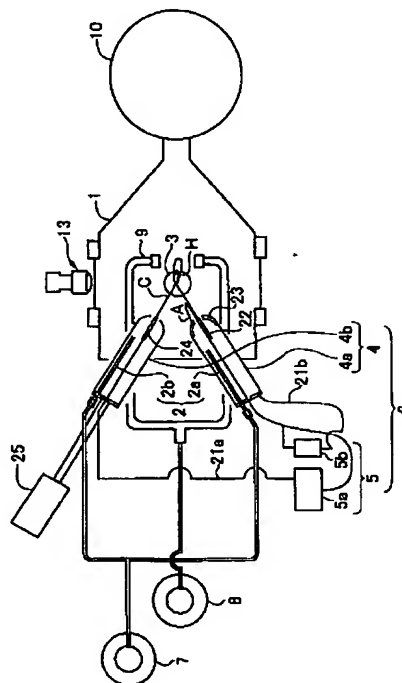
4K029 CA03 DD06

(54)【発明の名称】 超微粒子の製造装置および製造方法

(57)【要約】

【課題】 高生産性、低製造コスト、高エネルギー効率、製造装置の簡素化および信頼性の向上が可能であり、原料の制約が少なく、不純物が少ない超微粒子の製造装置および製造方法を提供する。

【解決手段】 作用ガスを吹き出しながら、非移行型プラズマトーチ4aの中心電極22と移行型プラズマトーチ4bの電極24とを直流電源によって通電して、V字状プラズマアークCまたはY字状プラズマアークを形成させ、このV字状プラズマアークCまたはY字状プラズマアークを超微粒子の原料となる原料体3にあって、前記原料体3を気化させて、蒸発ガスを発生させ、該蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付けて、前記蒸発ガスと前記反応・冷却ガスとを反応およびまたは冷却させて超微粒子を形成する



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記 (A) および (B) を具備することを特徴とする超微粒子の製造装置。

(A) プラズマアークを発生させるための中心電極、および、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズル、および、前記中心電極に近接して設けられた外周電極を具備する非移行型プラズマトーチと、  
プラズマアークを発生させるための電極、および、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズルを具備する移行型プラズマトーチと、  
前記中心電極および前記外周電極を接続した回路に設けられたパイロット電源と、  
前記中心電極および前記移行型プラズマトーチの電極を接続した回路に設けられた主電源と、  
前記非移行型プラズマトーチおよびまたは移行型プラズマトーチを移動させる移動手段とを有するプラズマアーク発生手段。

(B) 前記プラズマアークを超微粒子の原料となる原料体にあてることによって発生した蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付ける反応・冷却ガス吹き付けノズル。

【請求項 2】 前記パイロット電源は、直流電源と、交流電源を有する高周波アーク発生手段とを具備し、直流電圧に高周波交流電圧を重ねさせることを特徴とする請求項 1 に記載の超微粒子の製造装置。

【請求項 3】 作用ガスを吹き出しながら、非移行型プラズマトーチの中心電極と移行型プラズマトーチの電極とを直流電源によって通電して、V 字状プラズマアークまたは Y 字状プラズマアークを形成させ、この V 字状プラズマアークまたは Y 字状プラズマアークを超微粒子の原料となる原料体にあて、前記原料体を気化させて、蒸発ガスを発生させ、該蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付けて、前記蒸発ガスと前記反応・冷却ガスとを反応およびまたは冷却させて超微粒子を形成することを特徴とする超微粒子の製造方法。

【請求項 4】 作用ガスを吹き出しながら、非移行型プラズマトーチの中心電極と該中心電極に近接して設けられた外周電極とを通電して、前記非移行型プラズマトーチ先端からパイロットアークを発生させ、  
作用ガスを吹き出しながら、移行型プラズマトーチの電極を前記パイロットアークに接触させ、前記中心電極と前記移行型プラズマトーチの電極とを通電して、これらの間にプラズマアークを発生させ、  
前記中心電極と前記外周電極の通電を切断すると共に、前記非移行型プラズマトーチおよびまたは前記移行型プラズマトーチを移動させて、前記プラズマアークを V 字状プラズマアークまたは Y 字状プラズマアークに成長させ、  
該 V 字状プラズマアークまたは Y 字状プラズマアークを、超微粒子の原料となる原料体にあて、前記原料体を気化させて、蒸発ガスを発生させ、該蒸発ガスに反応・

冷却ガスを吹き付けて、前記蒸発ガスと前記反応・冷却ガスとを反応およびまたは冷却させて超微粒子を形成することを特徴とする超微粒子の製造方法。

【請求項 5】 前記中心電極と前記外周電極との間に、直流電圧と高周波交流電圧とを印加し重畳させて、パイロットアークを発生させることを特徴とする請求項 4 に記載の超微粒子の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

10 【発明の属する技術分野】本発明は、高生産性、低製造コスト、高エネルギー効率、製造装置の簡素化および信頼性の向上が可能であり、原料の制約が少なく、不純物の少ない超微粒子の製造装置および製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来の超微粒子の製造方法として、移行型直流プラズマアーク法、非移行型直流プラズマアーク法、高周波プラズマ法、ハイブリッドプラズマ法などが例示される。移行型直流プラズマアーク法については、例えば、特許第 2980980 号公報で製造装置および製造方法が開示されている。この超微粒子の製造装置は、図 4 に示す一例のようなものである。この超微粒子製造装置は、外部と隔離するためのチャンバ 31 と、カソード 32 を有するプラズマトーチ 33 と、アノードである原料体 34 と、プラズマトーチ 33 と原料体 34 との間にプラズマアークを発生させるための電源 35 と、原料体 34 を保持、送り出す原料体保持・送り出し装置 36 と、作用ガスタンク 37 から供給された作用ガスをカソード 32 の周囲に吹き付ける作用ガス吹き付けノズル 38 と、原料体 34 がプラズマアークによって蒸発して発生した蒸発ガスに、反応・冷却ガスタンク 39 から供給された反応・冷却ガスを蒸発ガスに吹き付ける反応・冷却ガス吹き付けノズル 40 と、蒸発ガスを冷却する蒸発ガス冷却タンク 41 と、コレクタ 42 とを有する。カソード 32 は非消費極であり、原料体 34 は消費極である。また、プラズマトーチ 33 は原料体 34 の表面に対して斜めに角度をつけて一定の距離を置いて配置されている。

【0003】この装置の場合、まず、アルゴン、窒素、水素およびこれらの混合ガスからなる作用ガスを作用ガス吹き付けノズル 38 から流出させながら、カソード 32 と原料体 34 とを電源 35 によって通電して、プラズマアークを発生させる。これにより、電子はカソード 32 から原料体 34 に移行する。このように発生したプラズマアークにより、原料体 34 は加熱され、表面から蒸発する。原料体 34 表面から蒸発した蒸発ガスは、プラズマアークによってプラズマトーチ 33 の前方側に吹き流される。そして、この蒸発ガス流を横切るように、酸素、窒素、空気およびこれらの混合ガスからなる反応・冷却ガスを、原料体 34 近傍に設置された反応・冷却ガス吹き付けノズル 40 から流出する。蒸発気体流に含ま

れる金属蒸気は、反応・冷却ガスと反応して、あるいは冷却されて、ナノサイズの金属酸化物微粒子などの超微粒子を形成する。この超微粒子を含む気体流は蒸発ガス冷却タンク 41 に移動し、冷却タンク 41 内のコレクタ 42 によって分離される。

#### 【0004】

【発明が解決しようとする課題】ところで、上述の方法では、カソード 32 と原料体 34 との間を通電し、プラズマアークを発生させるので、原料体 34 に適用できる材料は導電体に制限されていた。そのため、非導電性の原料や粉体を、そのままの状態では蒸発（形成する超微粒子が酸化物の場合、燃焼ということがある）させることはできなかった。そこで、非導電性の原料や粉体を導電性原料体として用いるためには、非金属の導電性材料

（例えば、炭素材料）などを混合、成形して原料体 34 を作製する前工程が必要であった。また、導電性材料、特に炭素材料などに含まれる不純物が超微粒子に混入することがあった。このように不導体を原料として用いる場合には、導電性材料のコストがかかるので、超微粒子の製造コストが高かった。また、製造工程数が多くなるので、生産性が低かった。さらに、炭素材料含有成形原料体の場合、与えたエネルギーのかかりの量が炭素材料の燃焼に費やされ、エネルギーロスとなっていた。

【0005】また、移行型法のプラズマアークの高温部の断面積は狭いが、細い原料体の入手、作製は困難であるため、原料体の断面積が広がる場合があり、蒸発面は均一には加熱されない。均一に加熱するためには、原料体 34 を回転させる必要があるが、この場合、加熱溶解後、蒸発せずにアーク高温部から離れて冷却してしまい、原料ロスおよびエネルギーロスとなっていた。

【0006】また、移行型法の場合、正極であるプラズマトーチ 33 と負極である原料体 34 との距離が変わると電気的條件（電流値、電圧）は変動してしまい、この変動を自動的に修正する手段においては、原料体 34 の送り出し量制御の為に複雑な機構が必要であり、そのため、装置のコストが高かった。また、原料体 34 の蒸発面に酸化物が付着、堆積した場合、導電不良となってしまうため、製造を一旦中断し、堆積物を除去しなければならず、生産性を低下させていた。

【0007】また、非移行型直流プラズマアーク法は、図 5 に示すように、1 本のプラズマトーチ 43 が中心電極 44 と外周電極 45 とを有し、これらを通電して、プラズマアークを発生させ、原料体 46 を溶解、蒸発させるので、原料体 46 を通電する必要はないが、プラズマアークの温度はプラズマトーチ 43 から離れるにしたがって急速に低下するため、原料体を蒸発させるには、多くのエネルギーを必要とし、エネルギー効率が低かった。また、高周波プラズマ法は、誘導コイルの中央に作用ガスを流してプラズマを発生させ、さらに原料を流して蒸発させる。コイルの中央に原料を流して、蒸発させ

るため、原料は粉末である必要がある。また、ハイブリッド法は、高温、高エネルギーのプラズマを発生させることができるが、原料は粉体でなければならない。

【0008】本発明は、前記事情を鑑みて行われたものであり、高生産性、低製造コスト、高エネルギー効率、製造装置の簡素化および信頼性の向上が可能であり、原料の制約が少なく、不純物の少ない超微粒子の製造装置および製造方法を提供することを目的とする。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明の超微粒子の製造装置は、下記（A）および（B）を具備するものである。

（A）プラズマアークを発生させるための中心電極、および、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズル、および、前記中心電極に近接して設けられた外周電極を具備する非移行型プラズマトーチと、プラズマアークを発生させるための電極、および、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズルを具備する移行型プラズマトーチと、前記中心電極および前記外周電極を接続した回路に設けられたパイロット電源と、前記中心電極および前記移行型プラズマトーチの電極を接続した回路に設けられた主電流電源と、前記非移行型プラズマトーチおよびまたは移行型プラズマトーチを移動させる移動手段とを有するプラズマアーク発生手段。

（B）前記プラズマアークを超微粒子の原料となる原料体にあてることによって発生した蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付ける反応・冷却ガス吹き付けノズル。

【0010】また、本発明の超微粒子の製造装置では、前記パイロット電源は、直流電源と、交流電源を有する高周波アーク発生手段とを具備し、直流電圧に高周波交流電圧を重ねさせることができる。

【0011】本発明の超微粒子の製造方法は、作用ガスを吹き出しながら、非移行型プラズマトーチの中心電極と移行型プラズマトーチの電極とを直流電源によって通電して、V 字状プラズマアークまたは Y 字状プラズマアークを形成させ、この V 字状プラズマアークまたは Y 字状プラズマアークを超微粒子の原料となる原料体にあて、前記原料体を気化させて、蒸発ガスを発生させ、該蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付けて、前記蒸発ガスと前記反応・冷却ガスを反応およびまたは冷却させて超微粒子を形成する方法である。

【0012】また、本発明の超微粒子の製造方法は、作用ガスを吹き出しながら、非移行型プラズマトーチの中心電極と該中心電極に近接して設けられた外周電極とを通電し、前記非移行型プラズマトーチ先端からパイロットアークを発生させ、作用ガスを吹き出しながら、移行型プラズマトーチの電極を前記パイロットアークに接触させ、前記中心電極と前記移行型プラズマトーチの電極とを通電し、これらの間にプラズマアークを発生させ、前記中心電極と前記外周電極の通電を切断すると共に、

前記非移行型プラズマトーチおよびまたは前記移行型プラズマトーチを移動させて、前記プラズマアークをV字状プラズマアークまたはY字状プラズマアークに成長させ、該V字状プラズマアークまたはY字状プラズマアークを、超微粒子の原料となる原料体にて、前記原料体を気化させて、蒸発ガスを発生させ、該蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付けて、前記蒸発ガスと前記反応・冷却ガスとを反応およびまたは冷却させて超微粒子を形成する方法である。

【0013】また、本発明の超微粒子の製造方法では、前記中心電極と前記外周電極との間に、直流電圧と高周波交流電圧とを印加し重畳させて、パイロットアークを発生させることができる。

【0014】

【発明の実施の形態】本発明の超微粒子製造装置の一例を図1および図2に示す。この超微粒子製造装置は、外部の雰囲気気を遮断するチャンバ1と、プラズマトーチ4および電源5を有するプラズマアーク発生手段6と、プラズマトーチ4に供給する作用ガスが充填された作用ガスタンク7と、反応・冷却ガスタンク8に充填された反応・冷却ガスを原料体3が蒸発して発生した蒸発ガスに吹き付ける反応・冷却ガス吹き付けノズル9と、チャンバ1と連設し、原料体3が蒸発した蒸発ガスを膨張させて冷却し、かつ蒸発ガスと生成した超微粒子を分離する蒸発ガス冷却タンク10とを有するものである。この装置において、プラズマトーチ4は、発生したプラズマアークの軸方向が、原料体3の蒸発面に対して斜め方向に配置される。また、反応・冷却ガス吹き付けノズル9は、プラズマトーチ4との間に原料体3が配置されるように設けられる。

【0015】さらに、原料体3をチャンバ1の外から保持し、原料体3を送り出す原料体保持・送り出し装置12と、原料体3が蒸発している位置を検出し、その情報を解析し、信号を原料体保持・送り出し装置12に出力して原料体3の送り出し速度を決定する蒸発面位置検出装置13とを有している。ここで、反応・冷却ガスとは、原料体3が蒸発し、発生した蒸発ガスと反応する反応ガス、およびまたは、蒸発ガスを冷却させる冷却ガスのことをいう。例えば、金属酸化物超微粒子や金属窒化物超微粒子を形成させる場合に、反応・冷却ガスとして用いられる酸素や窒素は反応・冷却ガスとなり、金属超微粒子を形成させる場合に、反応・冷却ガスとして用いられる不活性ガスは冷却ガスとなる。

【0016】本発明の超微粒子の製造装置の特徴であるプラズマアーク発生手段6は、他のプラズマトーチの電極との電子の移行がなくともプラズマアークを発生することができる非移行型プラズマトーチ4aと、他のプラズマトーチの電極との電子の移行が起こってプラズマアークを発生させる移行型プラズマトーチ4bと、これらのプラズマトーチの電極を接続する回路21aに設けら

れた主電流電源5aと、非移行型プラズマトーチ4aの中心電極22および外周電極23を接続した回路21bに設けられたパイロット電源5bと、移行型プラズマトーチ4bを移動させる移動手段25とを具備している。非移行型プラズマトーチ4aは、プラズマアークを発生させるための中心電極22と、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズル2aと、中心電極22に近接して設けられた外周電極23とを具備している。そして、作用ガス吹き出しノズル2aから作用ガスを吹き出しながら、パイロット電源5bによって中心電極22と外周電極23とを通電して非移行型プラズマトーチ4a先端からパイロットアークAを発生させる。

【0017】移行型プラズマトーチ4bは、プラズマアークを発生させるための電極24と、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズル2bとを具備している。移行型プラズマトーチ4bは、外周電極を具備しないので、非移行型プラズマトーチのようにパイロットアークを発生することはできない。非移行型プラズマトーチ4aおよび移行型プラズマトーチ4bは、図3aに示すように、非移行型プラズマトーチ4aから発生するパイロットアークAに移行型プラズマトーチ4bの電極24が接触するように設置されている。また、非移行型プラズマトーチ4aおよび移行型プラズマトーチ4bは、先端がノズル状の形状を有していることが好ましい。

【0018】また、非移行型プラズマトーチ4aの中心電極22および移行型プラズマトーチ4bの電極24は非消費性である。これらは、例えば、タングステンを主成分とした材料などが用いられる。また、外周電極23も非消費性である。また、外周電極23は、中心電極22に近接して設けることができれば特に制限はなく、例えば、リング状の構造を有するものが挙げられる。また、パイロット電源5bは、直流電源と、交流電源を有する高周波アーク発生手段（図示せず）とを具備し、直流電圧に高周波交流電圧が重畳できることが好ましい。

【0019】蒸発面位置検出装置13は、原料体の蒸発面の位置を検出し、プラズマアーク端と原料体表面との距離を一定に保つためのものである。上述した一例では、蒸発面位置検出装置13は、CCDカメラを具備しており、CCDカメラから入力した蒸発面の画像を画像処理システムにより解析し、信号を原料体保持・送り出し装置12に出力し、その信号に応じて原料体保持・送り出し装置12を作動させるものである。コレクタ11における、超微粒子と気体とを分離する手段は特に制限されず、例えば、フィルタなどが挙げられる。移動手段25は、中心電極22と移行型プラズマトーチ4bの電極24との間に形成されるプラズマアークをV字状に形成することができるように特に制限されない。

【0020】上述した本発明の超微粒子の製造装置においては、プラズマアーク発生手段6が、中心電極22と、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズル2a

と、中心電極 22 に近接して設けられた外周電極 23 とを具備する非移行型プラズマトーチ 4 a、および、電極 24 と、作用ガスを吹き出す作用ガス吹き出しノズル 2 b とを具備する移行型プラズマトーチ 4 b、および、中心電極 22 と外周電極 23 とを通电するパイロット電源 5 b、および、中心電極 22 と移行型プラズマトーチ 4 b の電極 24 とを通电する主電流電源 5 a を有している。これにより、非移行型プラズマトーチ 4 a からパイロットアーク A を発生させることができる。そして、図 3 a に示すように、このパイロットアーク A に移行型プラズマトーチ 4 b の電極 24 を接触させ、中心電極 22 と移行型プラズマトーチ 4 b の電極 24 とを通电して、中心電極 22 と移行型プラズマトーチ 4 b の電極 24 との間にプラズマアークを容易に発生させることができる。

【0021】また、プラズマアーク発生手段 6 には、移行型プラズマトーチ 4 b を移動させる移動手段 25 が設けられているので、プラズマアークが形成した後、移行型プラズマトーチ 4 b を移動させて、図 3 b に示すように、プラズマアークを V 字状に成長させ、中心電極 22 と移行型プラズマトーチ 4 b の電極 24 との間で電子が移動する V 字状プラズマアーク C を容易に形成させることができる。このような V 字状プラズマアーク C は、その中間点をプラズマトーチ間の中間電位を有する仮想電極点と見なすことができる。そのため、原料体 3 に電子を移行させる必要がなく、原料体 3 に非導電性のものを用いることができる。したがって、原料体が非導電性の場合に、従来行っていたような、炭素材料などの導電性物質の混合の必要がなくなり、原料コストを低減できる。また、炭素材料の燃焼に費やされていたエネルギーも削減することができる。また、炭素材料などに含まれる不純物の混入をなくすることができる。また、原料体としての制約が削減され、広範囲に原料を選択することができる。

【0022】また、原料体 3 に電気を流す必要がないので、原料体 3 の溶融、酸化崩壊を起こすことがない。また、原料体保持・送り出し装置 12 に通電が不要となり、設備の構造が簡素化され、信頼性が向上する。また、原料体保持・送り出し装置 12 に消耗品である保持電極を設ける必要がなくなり、その費用を削減することができる。また、電気の漏電も防ぐことができる。また、非消費性の電極であるため、電気的変動が少なく、原料体 3 の送り出しの自動化が容易である。

【0023】また、上述したプラズマアーク発生手段 6 では、V 字状プラズマアーク C を形成することができ、この V 字状プラズマアーク C の V 字先端付近にはプラズマ濃度が高くなり、周囲よりも温度が高いアーク高温部 H を形成することができる。これらのことより、アーク高温部 H は、長さが長く、断面積も大きいので、原料体 3 の蒸発量を多くすることができる。その結果、超微粒

子の生産性が向上する。

・【0024】また、上述した超微粒子の製造装置においては、反応・冷却ガス吹き付けノズル 9 を有するので、蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付けて、反応・冷却ガスが酸素や窒素の場合には、金属酸化物超微粒子や金属窒化物超微粒子を形成させることができ、反応・冷却ガスが不活性ガスの場合には、金属超微粒子を製造することができる。また、その生産性もさらに向上する。また、上述した超微粒子の製造装置においては、パイロット電源 5 b が、直流電源と、交流電源を有する高周波アーク発生手段とを具備し、直流電圧に高周波交流電圧を重畳させ、高周波アークの誘導により、パイロットアークの発生をより容易にすることができる。その結果として、V 字状プラズマアーク C のアーク高温部 H を発生させることがさらに容易となる。また、非移行型プラズマトーチ 4 a および移行型プラズマトーチ 4 b は、先端がノズル状の形状を有していることにより、プラズマアーク中のプラズマ濃度をより高くすることができ、より高温にすることができる。

【0025】なお、本発明の超微粒子の製造装置は、図示例に限定されるものではない。上述した超微粒子の製造装置において、移動手段 25 は移行型プラズマトーチ 4 b のみを移動させるものであったが、移動手段 25 によって非移行型プラズマトーチ 4 a を移動させてもよいし、非移行型プラズマトーチ 4 a および移行型プラズマトーチ 4 b の両方を移動させてもよい。また、原料体保持・送り出し装置 12 は、図示例ではチャンバ 1 の下に設けられているが、チャンバ 1 の横に設けて、原料体を保持し、横方向に送り出すようにしてもよい。また、原料体が粉体、粒状、塊状の場合には、原料体保持・送り出し装置 12 は使用できないので、その代わりに蒸発用つばを用いることができる。

【0026】次に、本発明の超微粒子の製造方法の一例について図 1 および図 2 を参照しながら説明する。まず、原料体保持・送り出し装置 12 により超微粒子の原料体 3 を保持して、チャンバ 1 内に原料体 3 をセットする。そして、作用ガスを作用ガス吹き出しノズル 2 a から非移行型プラズマトーチ 4 a 内に吹き出し、さらに非移行型プラズマトーチ 4 a から作用ガスを流出させながら、中心電極 22 と、この中心電極 22 先端に近接して設けられた外周電極 23 とをパイロット電源 5 b によって通电し、高周波アークの誘導によって、中心電極 22 と外周電極 23 との間にパイロットアーク A を発生させる。次いで、図 3 a に示すように、このパイロットアーク A に移行型プラズマトーチ 4 b の電極 24 を接触させる。そして、非移行型プラズマトーチ 4 a の中心電極 22 と移行型プラズマトーチ 4 b の電極 24 とを主電流電源 5 a によって通电し、高周波アークの誘導によって、プラズマアークを発生させる。

【0027】次いで、図 3 b に示すように、移動手段 2

5によって、移行型プラズマトーチ4bを移動させて、プラズマアークがV字状になるように成長させるとともに、中心電極22と外周電極23との通電を切断する。これにより、中心電極22と移行型プラズマトーチ4bの電極24との間にV字状プラズマアークCが形成する。また、プラズマガス流によってはY字状プラズマアークが形成する場合もある。V字状プラズマアークCのV字先端付近は、その周囲よりも温度が高く、温度1500℃以上のアーク高温部Hとなっている。このアーク高温部Hを、原料体保持・送り出し装置12によってチャンバ1内にセットされた原料体3にあてると、原料体3は熔融、蒸発して、原料体3の蒸発ガスが発生する。

【0028】このようにして原料体3から発生した蒸発ガスは、蒸発ガス冷却タンク10方向に流れていく。この蒸発ガスに反応・冷却ガスを反応・冷却ガス吹き付けノズル9から吹き付ける。そして、蒸発ガスと反応・冷却ガスとが反応し、または冷却されることによって、超微粒子が形成する。この時、蒸発ガスは温度が低下するため、プラズマ状態でなくなる。このようにして形成された超微粒子を含む蒸発ガス流は、チャンバ1と連設している蒸発ガス冷却タンク10に移動し、さらに冷却される。蒸発ガス冷却タンク10に入った超微粒子は、コレクタ11により蒸発ガスと分離され、蒸発ガス冷却タンク10下部へと落下する。そして、蒸発ガス冷却タンク10下部から抜き出して回収される。

【0029】上述した本発明の超微粒子の製造方法において、原料体3には、材質に、金属などの導電性材料に限らず、金属酸化物などの非導電性材料を用いることができる。これらの原料体を用いることにより、金属超微粒子、金属酸化物超微粒子などを形成させることができる。また、原料体3の形状は、丸棒状、角棒状のものをを用いることができる。丸棒の場合、その直径は20～100mmであることが好ましい。このような棒状の原料体3を入手して使用してもよいし、粒状、粉状の原料に樹脂バインダを混合し、圧縮成形後、棒状の原料体3を作製して使用してもよい。樹脂バインダの混合比は、原料体全体の10～50重量%であることが好ましい。これらバインダを酸素存在下でプラズマアークによって燃焼させると、二酸化炭素および水となるので、超微粒子およびその製造には影響を与えることはない。また、原料体には粉状、粒状、塊状のものも用いることもできる。その場合には、原料体を蒸発用つぼに充填することが好ましく、また、原料体保持・送り出し装置12は使用しない。

【0030】また、原料体3は、蒸発して消費するので、蒸発面位置検出装置13を用いて、原料体の蒸発面の位置を検出する。この検出結果に対して原料体保持・送り出し装置12に信号を出力し、原料体保持・送り出し装置12を作動させて原料体3を送り出し、プラズマアーク先端と原料体3先端との距離を一定にする。そし

て、原料体3の蒸発を持続させる。

【0031】また、本発明における作用ガスは、アルゴン、窒素、水素およびこれらの混合物が好ましく用いられる。また、本発明における反応・冷却ガスは、酸素、窒素、ヘリウム、空気またはこれらの混合物が好ましく用いられる。また、反応・冷却ガスの流量、反応・冷却ガス吹き付けノズル9の位置によって超微粒子の粒径および粒径分布をコントロールすることができる。

【0032】本発明の超微粒子の製造方法にあつては、作用ガスを流出させながら、中心電極22と外周電極23とをパイロット電源5bによって通電し、高周波アークの誘導によって、中心電極22と外周電極23との間にパイロットアークAを発生させ、次いで、図3aに示すように、作用ガスを吹き出しながら、このパイロットアークAに移行型プラズマトーチ4bの電極24を接触させ、中心電極22と移行型プラズマトーチ4bの電極24とを主電流電源5aによって通電し、高周波アークの誘導によって、プラズマアークを発生させ、次いで、図3bに示すように、移行型プラズマトーチ4bを移動させて、プラズマアークがV字状になるように成長させる。これにより、中心電極22と移行型プラズマトーチ4bの電極24との間にV字状プラズマアークCまたはY字状プラズマアークを容易に形成させることができる。

【0033】このようなV字状プラズマアークCまたはY字状プラズマアークは、その中間点をプラズマトーチ間の中間電位を有する仮想電極点と見なすことができる。そのため、原料体に電子を移行させる必要がなく、原料体に非導電性のものを用いることができる。また、原料体3に電気を流す必要がないので、原料体3の熔融、酸化崩壊を起こすことがない。また、原料体保持・送り出し装置12に通電が不要となり、設備の構造が簡素化され、信頼性が向上する。また、原料体保持・送り出し装置12に消耗品である保持電極を設ける必要がなくなり、その費用を削減することができる。また、電気の漏電も防ぐことができる。

【0034】また、上述のように形成したV字状プラズマアークCまたはY字状プラズマアークは、アーク高温部Hの長さが長く、断面積も大きい。このようなアーク高温部Hを原料体3にあてて、蒸発させることにより、原料体3の蒸発面積を大きくすることができ、蒸発量を多くすることができる。また、原料を効率良く蒸発させることができる。また、原料体3を全て消費することが可能である。したがって、蒸発ガスの量を多くできるので、蒸発ガスを冷却することによって、超微粒子の生産性を向上させることができる。

【0035】また、アーク高温部Hが大きいので、プラズマアークの最適位置で原料体3を蒸発させることができるだけでなく、蒸発位置の位置設定の自由度が大きいので、超微粒子の粒径をコントロールしやすい。また、



蒸発面に酸化物が付着しても、蒸発面が広いために、導電不良になることがなく、製造を一旦停止して、堆積物を除去するなどの作業が不要となる。また、出力効率が優れているため、超微粒子製造に必要な消費電力を大幅に小さくすることができる。

【0036】また、上述した超微粒子の製造方法にあつては、蒸発ガスに反応・冷却ガスを吹き付けるので、反応・冷却ガスが酸素や窒素の場合には、金属酸化物超微粒子や金属窒化物超微粒子を形成させることができ、反応・冷却ガスが不活性ガスの場合には、金属超微粒子を製造することができる。また、その生産性もさらに向上する。

【0037】上述した超微粒子の製造方法において、中心電極 22 と外周電極 23 との間のパイロット電源 5b によって、直流電圧と高周波交流電圧とを印加し重畳させ、高周波アークの誘導によって、パイロットアーク A を発生させることができる。このようにパイロットアーク A を発生させる一例について説明する。作用ガスを作用ガス吹き出しノズル 2a から非移行型プラズマトーチ 4a 内に吹き出し、さらに非移行型プラズマトーチ 4a から作用ガスを流出させながら、中心電極 22 と外周電極 23 とをパイロット電源 5b によって直流電圧を印加し、通電する。この直流電圧に高周波アーク発生手段によって高周波交流電圧を重畳して、高周波アークを発生させる。そして、高周波アークの誘導により中心電極 22 と外周電極 23 との間にパイロットアーク A を発生させる。その後、高周波アーク発生手段による高周波交流電圧の重畳を止めて、高周波アークの発生を停止させる。

【0038】また、本発明における反応・冷却ガスに、酸素、窒素、空気またはこれらの混合物を好ましく用いることにより、蒸発ガスと容易に反応し、または、蒸発ガスを容易に冷却し、超微粒子を形成させることができる。また、原料体に不導体のものを好ましく用いることにより、原料体が非導電性の場合に、従来行っていたような、炭素材料などの導電性物質の混合の必要がなくなり、原料コストを低減できる。また、炭素材料の燃焼に費やされていたエネルギーも削減することができる。また、炭素材料などに含まれる不純物の混入をなくすることができる。これにより、パイロットアークの発生が容易である。その結果として、V 字状プラズマアーク C のアーク高温部 H を発生させることが容易となる。

#### 【0039】

【実施例】（実施例 1） $\text{SiO}_2$  超微粒子の製造方法  
本実施例では、図 1 および図 2 に示す超微粒子製造装置を使用した。まず、金属シリコン粗粒（粉碎品、粒度 1 mm 以下）と樹脂バインダを混合し、直径 50 mm の丸棒状に圧縮成型して、金属シリコン粗粒を含む原料体を作製した。この原料体を原料体保持・送り出し装置 12 に取り付けた。次いで、作用ガス吹き出しノズル 2a か

ら作用ガスとしてアルゴンを吹き出しながら、非移行型プラズマトーチ 4a のパイロット電源 5b によって直流電圧を印加し、中心電極 22 と外周電極 23 とを通電した。次いで、この直流電圧に高周波アーク発生手段によって高周波交流電圧を重畳することにより、高周波アークを発生させた。そして、高周波アークの誘導により、中心電極 22 と外周電極 23 との間にパイロットアーク A を発生させた。その後、高周波アーク発生手段による高周波交流電圧の重畳を止めて、高周波アークの発生を停止させた。

【0040】このパイロットアーク A に、作用ガス吹き出しノズル 4b からアルゴンを吹き出しながら、移行型プラズマトーチ 4b の電極 24 を接触させた。次いで、中心電極 22 と移行型プラズマトーチ 4b の電極 24 とを直流電源によって通電して、これら電極間にプラズマアークを発生させた。なお、非移行型プラズマトーチ 4a の中心電極 22 が負極となり、移行型プラズマトーチ 4b の電極 24 が正極となるように直流電源を通電した。次いで、パイロット電源 5b の通電を切断し、移動手段 25 によって移行型プラズマアーク 4b を移動させ、プラズマアークを成長させて、V 字状プラズマアークを形成させた。また、この V 字状プラズマアーク C の V 字先端付近には、アーク高温部 H が形成した。

【0041】このアーク高温部 H を含むプラズマアークを原料体の丸棒の先端部にあてて、原料体を蒸発させた。原料体の先端は消費していくが、原料体の蒸発を最適に持続させるために、蒸発面位置検出装置 13 を設けて、プラズマアーク先端と原料体先端との距離を一定に保った。この蒸発面位置検出装置 13 は、CCD カメラを具備しており、CCD カメラから入力した画像を画像処理システムにより解析し、信号を原料体保持・送り出し装置 12 に出力し、その信号に応じて原料体保持・送り出し装置 12 を作動させ、距離を一定に保った。

【0042】原料体から発生したシリコン蒸気は、プラズマアークのガス圧によって、プラズマアークの前方に流れた。このシリコン蒸気を横切るように、反応・冷却ガス吹き付けノズル 9 から酸素ガスを吹き付け、シリコン蒸気を急速に酸化させて、 $\text{SiO}_2$  超微粒子を形成させた。形成した  $\text{SiO}_2$  超微粒子および酸化された蒸発ガスは、蒸発ガス冷却タンク 10 に移動し、冷却された後に、コレクタ 11 によって  $\text{SiO}_2$  超微粒子と気体とに分離した。分離した  $\text{SiO}_2$  超微粒子を蒸発ガス冷却タンク 10 下部に設置された捕集容器に捕集した。

【0043】本実施例では、常時、電流値およびアーク形状が安定した運転をすることができた上に、原料の歩留まりは著しく向上した。本実施例における単位時間当たりの生産性は、従来の移行型法に比べて、2～10 倍程度であった。それにもかかわらず、単位時間当たりのガス流量は生産性に比例して上げる必要はなく、ガス、電気のコストは大幅に低下した。本実施例の方法では、

アーク高温部の断面を同じ電力量で比較した場合、従来の移行型法に比べ、本実施例でのアーク高温部は直径で約1.5倍、断面積で約2倍であった。そのため、原料体断面で蒸発面積が増したため、エネルギーロスは著しく減少した。また、本実施例の方法は、超微粒子の純度も向上し、純度を99.995重量%にすることができた。

【0044】（実施例2）シリコン単結晶粉砕品を使った超微粒子の製造方法

まず、シリコン単結晶を粉砕して、一辺が約10mmの粒状の原料とした。蒸発用をつぼをアーク高温部Hが当たる位置に設置した。なお、この蒸発用をつぼは、直径が100mmの半球であり、外側に水冷却をするためのジャケットが設けられている。また、蒸発用をつぼの材質は銅製で、表面には不純物対策としてジルコニアが溶射されている。

【0045】蒸発用をつぼにシリコン単結晶粉砕品を投入した後、実施例1と同様にして、中心電極22と移行型プラズマトーチ4bの電極24との間にV字状プラズマアークCを形成させた。このV字状プラズマアークCのV字先端付近のアーク高温部Hを、蒸発用をつぼ中のシリコン単結晶粉砕品にあて、蒸発させた。原料体から発生したシリコン蒸気は、プラズマアークのガス圧によって、プラズマアークの前方に流れた。このシリコン蒸気を横切るように、反応・冷却ガス吹き付けノズル9から酸素ガスを吹き付け、シリコン蒸気を急速に酸化させて、 $\text{SiO}_2$ 超微粒子を形成させた。形成した $\text{SiO}_2$ 超微粒子および酸化された蒸発ガスは蒸発ガス冷却タンク10に移動し、冷却された後に、コレクタ11により $\text{SiO}_2$ 超微粒子と気体とに分離した。分離した $\text{SiO}_2$ 超微粒子を蒸発ガス冷却タンク10下部に設置した捕集容器に捕集した。

【0046】（実施例3）金属ビスマス粒の直接蒸発による超微粒子の製造方法

原料として粒径が5mmの金属ビスマス粒を使用した。これを実施例2と同様のつぼに金属ビスマス粒を投入した後、実施例1と同様にして、中心電極22と移行型プラズマトーチ4bの電極24との間にV字状プラズマアークCを形成させた。このV字状プラズマアークCのV字先端付近のアーク高温部Hを、蒸発用をつぼ中のビスマス単結晶粉砕品にあて、蒸発させた。

【0047】原料体から発生したビスマス蒸気は、プラズマアークのガス圧によって、プラズマアークの前方に流れた。このビスマス蒸気を横切るように、反応・冷却ガス吹き付けノズル9から酸素ガスを吹き付け、ビスマス蒸気を急速に酸化させて、 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 超微粒子を形成させた。形成した $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 超微粒子および酸化された蒸発ガスは蒸発ガス冷却タンク10に移動し、冷却された後

に、コレクタ11により $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 超微粒子と気体とに分離した。分離した $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 超微粒子を蒸発ガス冷却タンク10下部に設置された捕集容器に捕集した。

【0048】従来の移行型法では、蒸発用をつぼ中の溶融した金属ビスマスの上に、既に蒸発、酸化した粉体が落下して非導電性の膜を形成していた。そのため、導電不良となり、しばしば運転を停止して酸化物膜を除去する必要があったが、本実施例ではそのような必要がなく、連続運転が可能であった。

【0049】

【発明の効果】本発明によれば、原料体に通電不要であり、導電性材料を混合する必要がなくなり、原料体の制約が少なく、不純物の少ない超微粒子を、高エネルギー効率かつ低コストで製造することができる。また、製造装置の簡素化および信頼性を向上させることができる。また、アーク高温部が大きくなるので、生産性を高くすることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の超微粒子の製造装置の一例を示す上面図である。

【図2】 本発明の超微粒子の製造装置の一例を示す側面図である。

【図3】 本発明の超微粒子の製造装置におけるパイロットアークに移行型プラズマトーチの電極が接触した状態を示す模式図である。

【図4】 従来の超微粒子の製造方法における移行型直流プラズマアーク法で用いられる超微粒子の製造装置の一例を示す側面図である。

【図5】 従来の超微粒子の製造方法における非移行型直流プラズマアーク法で用いられる超微粒子の製造装置の一例を説明する図である。

【符号の説明】

2a, 2b 作用ガス吹き出しノズル

3 原料体

4a 非移行型プラズマトーチ

4b 移行型プラズマトーチ

5a 主電流電源

5b パイロット電源

6 プラズマアーク発生手段

9 反応・冷却ガス吹き付けノズル

10 蒸発ガス冷却タンク

22 中心電極

23 外周電極

24 電極

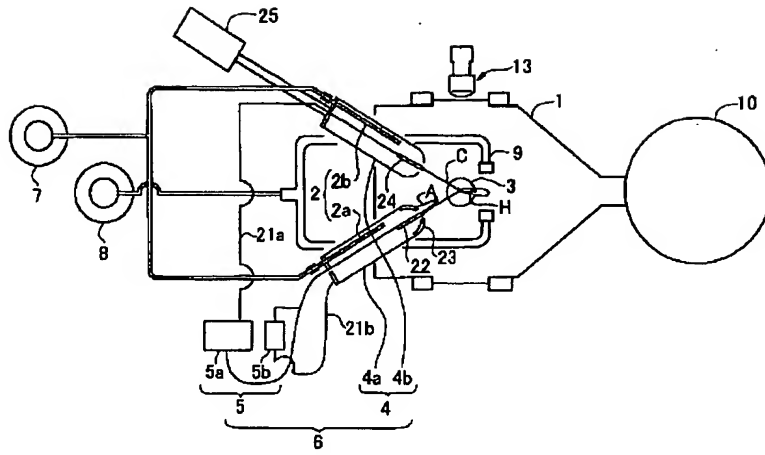
25 移動手段

A パイロットアーク

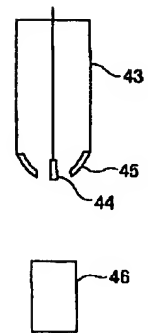
C V字状プラズマアーク

H アーク高温部

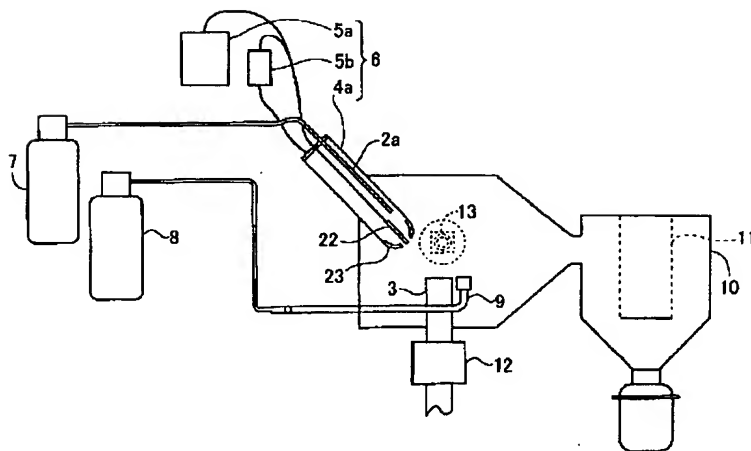
【図1】



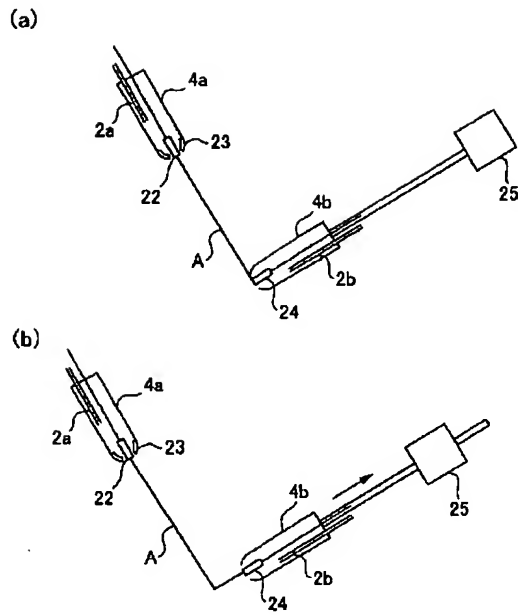
【図5】



【図2】



【図 3】



【図 4】

